

(8)

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES PATENTAMT



Int. Cl.:

B 01 j

B 01 j, 9/04

B 01 j, 4/00

(52)

Deutsche Kl.:

12 g, 1/01

12 g, 4/02

12 f, 4

(10)

Offenlegungsschrift 1 667 247

(11)

Aktenzeichen:

P 16 67 247.2 (R 47665)

(21)

Anmeldetag:

27. Dezember 1967

(22)

Offenlegungstag: 16. September 1971

(43)

Ausstellungsriorität: —

(30)

Unionspriorität

(32)

Datum: —

(33)

Land: —

(31)

Aktenzeichen: —

(54)

Bezeichnung:

Vorrichtung zur gleichmäßigen Verteilung von Flüssigkeit auf eine Mehrzahl von Reaktionsrohren in einem Reaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen

(61)

Zusatz zu: —

(62)

Ausscheidung aus: —

(71)

Anmelder:

Deutsche Texaco AG, 2000 Hamburg

Vertreter: —

(72)

Als Erfinder benannt:

Giehring, Horst, Dr.-Ing., 4130 Moers

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960): 5. 12. 1969

DT 1 667 247

Vorrichtung zur gleichmäßigen Verteilung von Flüssigkeit auf eine
Mehrzahl von Reaktionsrohren in einem Reaktor zur Durchführung che-
mischer Reaktionen

Zur Durchführung chemischer Reaktionen, d.h. zum Stoff- und bzw. oder Wärmeaustausch zwischen Flüssigkeiten untereinander oder zwischen Flüssigkeiten und Gasen sind Reaktionsbehälter oder Reaktoren bekannt, die in einer verbreiteten Bauform aus einem druckfesten zylindrischen Gefäß oder Kessel bestehen, das lotrecht angeordnet ist und über einem Sumpfteil, der die Reaktionsflüssigkeit aufnimmt, einen unteren und einen oberen Rohrboden enthält, die mit kreisförmigen Durchbrüchen versehen sind, in die eine Mehrzahl lotrecht verlaufender Rohre eingeschweißt sind. Über dem oberen Rohrboden befindet sich ein Kopfraum, in den die Reaktanten als Gas, Dampf oder in flüssiger Form eingebracht werden können, sofern der Reaktor im Gleichstrom betrieben wird. Es ist jedoch auch möglich, das gas- oder dampfförmige Ausgangsmaterial in den Sumpfteil des Reaktors einzuleiten (Gegenstrombetrieb).

Die einzelnen Rohre eines solchen Reaktors werden häufig mit gegebenenfalls katalytisch wirksamen Füllkörpern bzw. Kontaktten angefüllt. Reaktoren dieser Art werden auch als Rieselsäulen-Reaktoren bezeichnet.

Bei Reaktoren der beschriebenen Art ist es bekanntlich schwierig, jedes Reaktionsrohr mit der gleichen Menge der flüssigen Reaktionsteilnehmer zu beschicken. Diese Schwierigkeit tritt besonders hervor, wenn die Reaktionsrohre mit einer Katalysator- oder Kontaktmasse gefüllt sind, weil die Einhaltung meist enger Temperaturgrenzen in den Reaktionsrohren die Zuteilung gleicher Mengen der Reaktanten für alle Rohre erfordert. Diese Zuteilung wird im Falle des Gleichstrombetriebes weiter dadurch erschwert, daß die gasförmigen und gleiche Mengen der flüssigen Reaktanten gemeinsam in das obere Ende der Rohre einführt werden müssen.

In der deutschen Patentschrift.....(Patentanmeldung R 43 976 IVa/12g) ist ein Reaktor der beschriebenen Art schon vorgeschlagen worden, bei dem die einzelnen Reaktionsrohre am oberen Ende über den oberen Rohrboden hinaus nach oben hin verlängert sind und an dieser Verlängerung mit Bohrungen, Schlitzen, Ausschnitten u.dgl. versehen sind. Es wird damit erreicht, daß das flüssige Ausgangsmaterial sich auf dem oberen Rohrboden ansammelt und – sobald seine Standhöhe dazu ausreicht – über die erwähnten Bohrungen, Schlitze, Ausschnitte u.dgl. in den Rohrenden schließlich ständig in die Reaktionsrohre einläuft, so dass eine annähernd gleichmäßige Beschickung aller Reaktionsrohre erreicht wird. Bei dieser vorgeschlagenen Bauweise verbleibt in den oberen Rohrenden zwar genügend freie Querschnittsfläche für den Zutritt der gasförmigen Reaktionsteilnehmer im Falle des Gleichstrombetriebs. Es hat sich jedoch gezeigt, dass die bereits vorgeschlagene Bauweise die vielfach notwendige Gleichmäßigkeit in der Beschickung aller Rohre nicht immer gewährleistet, weil der durch die verhältnismäßig geringe Verlängerung der Rohre erreichbare hydrostatische Druck der Flüssigkeit die sich auf dem oberen Rohrboden ansammelt, relativ gering ist und die unvermeidlichen Störungseinflüsse, die durch unterschiedliche Wandrahigkeit der Rohre oder durch Fertigungstoleranzen für die Bohrungen, Schlitze, Ausschnitte u.dgl. entstehen, kaum überwiegt. Bei dieser Anordnung muß überdies der obere Rohrboden genau eben und waagerecht sein und die Überläufe (Bohrungen u.dgl.), in den Rohrenden müssen genau die gleiche Höhe über dem Rohrboden haben. Mit anderen Worten ist die vorgeschlagene Bauweise gegen solche unvermeidliche kleinen Störungen recht empfindlich, so dass die einzelnen Reaktionsrohre mit nicht völlig gleichen Flüssigkeitsmengen beschickt werden, was nicht nur unterschiedlich hohe Umsätze sondern auch Temperaturen in den Rohren zur Folge hat.

Weiterhin hat sich bei der Bauweise nach Patent.....(Patentanmeldung R 43 976 IVa/12g) ein sog. Wandeffekt nicht völlig ausschalten lassen. D.h., ein Großteil der in die Reaktionsrohre eintretenden Flüssigkeit läuft als Film entlang der inneren Wandoberflächen der Reaktionsrohre herunter und verteilt sich selbst dann nicht radial gleichmäßig über den Querschnitt der mit Kontaktmasse gefüllten Rohre, wenn der Durchmesser klein gehalten wird.

Die Erfindung betrifft somit eine Vorrichtung zur gleichmäßigen Verteilung von Flüssigkeit auf eine Mehrzahl von Reaktionsrohren in einem Reaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen, insbesondere für den Umsatz von gasförmigen und flüssigen Reaktanten an einem in den Reaktionsrohren angeordneten Katalysatorbett im Gleich- oder Gegenstrombetrieb, wobei der Reaktor als zylinderisches druckfestes Gefäß ausgebildet ist und einen Sumpfraum, einen Kopfraum und wenigstens einen unteren und oberen Rohrboden aufweist und die Reaktionsrohre in annähernd lotrechter Anordnung die Rohrböden durchsetzen und mit ihnen verschweißt sind.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, die geschilderten Mängel bereits früher vorgeschlagener Verteilungseinrichtungen abzustellen und unter allen Betriebsbedingungen eine völlig gleichmäßige Be- schickung der Reaktionsrohre mit Flüssigkeit zu gewährleisten.

Gemäß der Erfindung wird dieses Ziel erreicht durch eine im Kopfraum des Reaktors angeordnete Verteilerkammer (2, 11), die mit einer Pumpe (1, 10) für die Flüssigkeit sowie über enge Bohrungen (3) und daran angeschlossene Flüssigkeitsleitungen (5, 15) mit jedem Reaktionsrohr (6) unmittelbar oder unter Zwischenschaltung weiterer Verteilerkammern (14) und Rohrleitungen (12) verbunden ist.

Zur näheren Erläuterung der Erfindung sei auf die Zeichnung verwiesen, die zwei Bauformen der neuen Verteilungsvorrichtung im Längsschnitt schematisch wiedergibt.

Bei der Bauform nach Abb.^{*)} 1 ist in dem durch einen oberen Rohrboden geschaffenen Kopfraum eines Reaktorbehälters 4 eine Verteilerkammer 2 eingebaut, die über eine durch die Reaktorwandung geführte Rohrleitung mit einer Kolbenpumpe 1 in Verbindung steht. Die Verteilerkammer 2 ist, zweckmäßig an der Unterseite, mit engen Bohrungen 3 versehen, deren Anzahl der der Reaktionsrohre 6 entspricht. Rohrleitungen 5 verbinden jede Bohrung 3 mit dem oberen, offenen Ende eines

^{*)} in den Zeichnungen wird "Abbildung" verwendet

Reaktionsrohrs 6. Diese Enden der Rohre 6 sind durch den oberen Rohrboden geführt und dort druckdicht befestigt, z.B. durch Verschweißen. Die Rohre 6 können mit einem Katalysatorbett 8, gegebenenfalls auch mit Füllkörpern anderer Art gefüllt sein. Der Kopfraum des Reaktors ist ferner mit – nicht dargestellten – Mitteln zur Einleitung (im Falle eines Gleichstrombetriebs) oder zur Ableitung (für Gegenstrombetrieb) der gasförmigen Reaktionsteilnehmer versehen. Damit diese Gase in die Rohre 6 bzw. die Katalysatormasse 8 gelangen bzw. diese verlassen können, sind die Enden der Rohrleitungen 5 in den oberen Einläufen der Reaktionsrohre 6 mit Hilfe von Abstandshaltern 7 derart befestigt, dass der untere Teil der Rohrleitungen 5 in Achsrichtung der Rohre 6 verläuft und zwischen Rohrleitung 5 und Rohren 6 jeweils ein Ringraum 9 zum Hindurchtritt der Gase verbleibt.

Bei der Bauform nach Abb. 2 ist im Kopfraum eines Reaktionsbehälters 13 eine erste Verteilerkammer 11 vorgesehen (die der Kammer 2 der 1. Bauform im wesentlichen entspricht). Zum Unterschied von der 1. Bauform führen die mit Kammer 11 verbundenen Rohrleitungen 12 nicht unmittelbar zu den Reaktionsrohren, sondern münden in mehrere Verteilerkammern 14 von annähernd gleichem Aufbau wie Kammer 11 ein. Von den Verteilerkammern 14 führen (in der für Abb. 1 beschriebenen Weise) Rohrleitungen 15 zu den Reaktionsrohren (die nicht dargestellt sind). Die 2. Bauform ist für Reaktoren mit einer großen Anzahl von Reaktionsrohren (6) bestimmt, etwa 100 oder auch mehr.

Für das oben geschilderte Ziel der Erfindung wäre es möglich, jedes Reaktionsrohr 6 über eine Rohrleitung mit einer eigenen Dosierpumpe zu verbinden. Der hierfür erforderliche Aufwand an Pumpen, Motoren und Steuerungen wäre indessen untragbar hoch. Die erfindungsgemäße Lösung des Problems der gleichmäßigen Verteilung benötigt hingegen nur eine Pumpe (1, 10), obwohl natürlich auch mehrere verwendet werden können.

Die Pumpe (1, 10) soll schnelle Druck- und langsamere Saughübe ausführen. Die während des Druckhubs geförderte Flüssigkeit strömt in die Verteilerkammer (2), deren Bohrungen (3) im Durchmesser so bemessen

109838 / 1597

sind, dass der Förderhub der Pumpe 1 einen Überdruck von 2 - 4 atü in der Kammer (2) bewirkt. Während des Saughubes der Pumpe (1, 10) nimmt dieser Überdruck ab, jedoch infolge der als Drosselstrecken wirkenden Bohrungen (3) nur allmählich. Durch rasche Hubfolge der Pumpe und die Verzögerung der Flüssigkeit in den Zuleitungen (8, 5, 15) wird am Eingang der Rohre 6 ein quasi-kontinuierlicher Flüssigkeitsstrom großer Gleichmäßigkeit erzeugt. Bei der Bauform nach Abb. 2 ist es zweckmäßig, den Überdruck in der 1. Verteilerkammer 11 auf 3 - 6 atü und in den 2. Kammern (14) auf je 2 - 4 atü einzustellen. Für diese Drucke sind Bohrungen (3) mit einem Durchmesser von etwa 0,5 - 2 mm im allgemeinen ausreichend.

Die neue Vorrichtung ist wesentlich weniger störanfällig als die in der Patentschrift.....(Patentanmeldung R 43 976 IVa/12g) vorschlagene, da durch das Vorhandensein eines genügend großen Druckunterschiedes vor und nach den vielen miteinander in Verbindung stehenden Einzelbohrungen die treibende Kraft für den Flüssigkeitsdurchgang so groß ist, dass geringe Unterschiede der Lochbeschaffenheit, der Lochhöhe oder der Lochsauberkeit keinen Einfluß auf die Durchsatzmenge mehr haben. Diese Unterschiede bei den engen Bohrungen wirken sich vor allem durch die Oberflächenspannung der Flüssigkeit bei geringem, rein statischem Flüssigkeitsdruck aus. Bei hohem Flüssigkeitsdruck spielt die Oberflächenspannung als Gegenkraft aber nur noch eine völlig untergeordnete Rolle. Ein Herablaufen der Flüssigkeit an der Rohrwan dung wird durch die axiale Anordnung der Zuleitungsrohre (5, 15) vermieden.

Die erfindungsgemäße Vorrichtung lässt sich mit besonderem Vorteil zur Durchführung des Verfahrens zur Herstellung von Methylisobutylketon anwenden, bei dem Aceton mit Hilfe eines sauren Ionenaustauscher-Katalysators zu Mesityloxyd kondensiert und dieses durch Einwirkung von Wasserstoff in Gegenwart eines Hydrierkatalysators hydriert wird. Verfahren dieser Art sind z.B. beschrieben in DBP 1 238 453, Patent.....(Patentanmeldung R 43 650) oder DBP 1 193 931, IVb/12o

1667247

- 6 -

Die neue Vorrichtung eignet sich jedoch auch zur Entschwefelung von Kohlenwasserstoffen ("Süßen") durch katalytische Druckhydrierung und ähnliche Zwecke. Die erfindungsgemäße Vorrichtung ist besonders wertvoll für Verfahren, die mit hoher Wärmetönung verbunden sind, weil die Gleichmäßigkeit der Beschickung der Reaktionsrohre die Einhaltung enger Temperaturgrenzen gewährleistet.

109838/1597

ORIGINAL INSPECTED

166/247
Homberg/Ndrh., den 19. Dez. 1967

Patentansprüche

1. Vorrichtung zur gleichmäßigen Verteilung von Flüssigkeit auf eine Mehrzahl von Reaktionsrohren in einem Reaktor zur Durchführung chemischer Reaktionen, insbesondere für den Umsatz von gasförmigen und flüssigen Reaktanten an einem in den Reaktionsrohren angeordneten Katalysatorbett im Gleich- oder Gegenstrombetrieb, wobei der Reaktor als zylindrisches druckfestes Gefäß ausgebildet ist und einen Sumpfraum, einen Kopfraum und wenigstens einen unteren und oberen Rohrboden aufweist und die Reaktionsrohre in annähernd lotrechter Anordnung die Rohrböden durchsetzen und mit ihnen verschweißt sind, gekennzeichnet durch eine im Kopfraum des Reaktors angeordnete Verteilerkammer (2, 11), die mit einer Pumpe (1, 10) für die Flüssigkeit sowie über enge Bohrungen (3) und daran angeschlossene Flüssigkeitsleitungen (5, 15) mit jedem Reaktionsrohr (6) unmittelbar oder unter Zwischenschaltung weiterer Verteilerkammern (14) und Rohrleitungen (12) verbunden ist.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Rohrleitungen (5, 15) in den oberen Enden der Reaktionsrohre (6) von Abstandshaltern (7), die einen Teil des Querschnittes der Rohre (6) frei lassen, in Achsrichtung der Rohre (6) gehalten sind.

3. Vorrichtung nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Pumpe (1, 10) als Kolbenpumpe mit schnellem Druck- und langsamem Ansaughub ausgebildet ist und der Durchmesser der Bohrungen (3) auf das Fördervolumen der Pumpe (1, 10) so abgestimmt ist, dass in der oder den Verteilerkammer(n) (2, 14) ein Überdruck von wenigstens 2 - 3 atü erzeugt wird.

RHEINPREUSSEN
Aktiengesellschaft
für Bergbau und Chemie

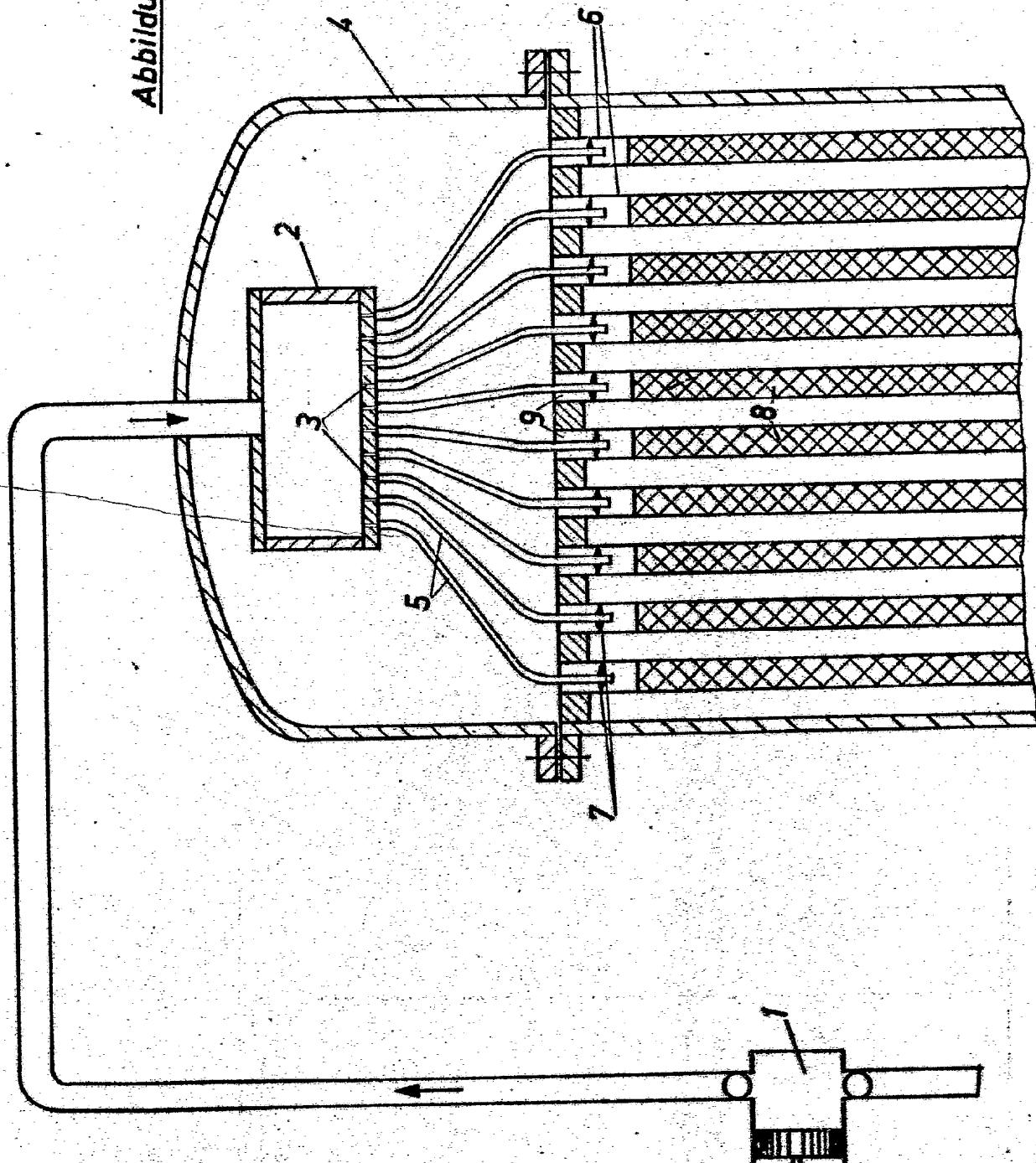
109838/1597

ORIGINAL INSPECTED

1667247

12g 1-01 AT: 27.12.1967 OT: 16.09.1971

Abbildung 1

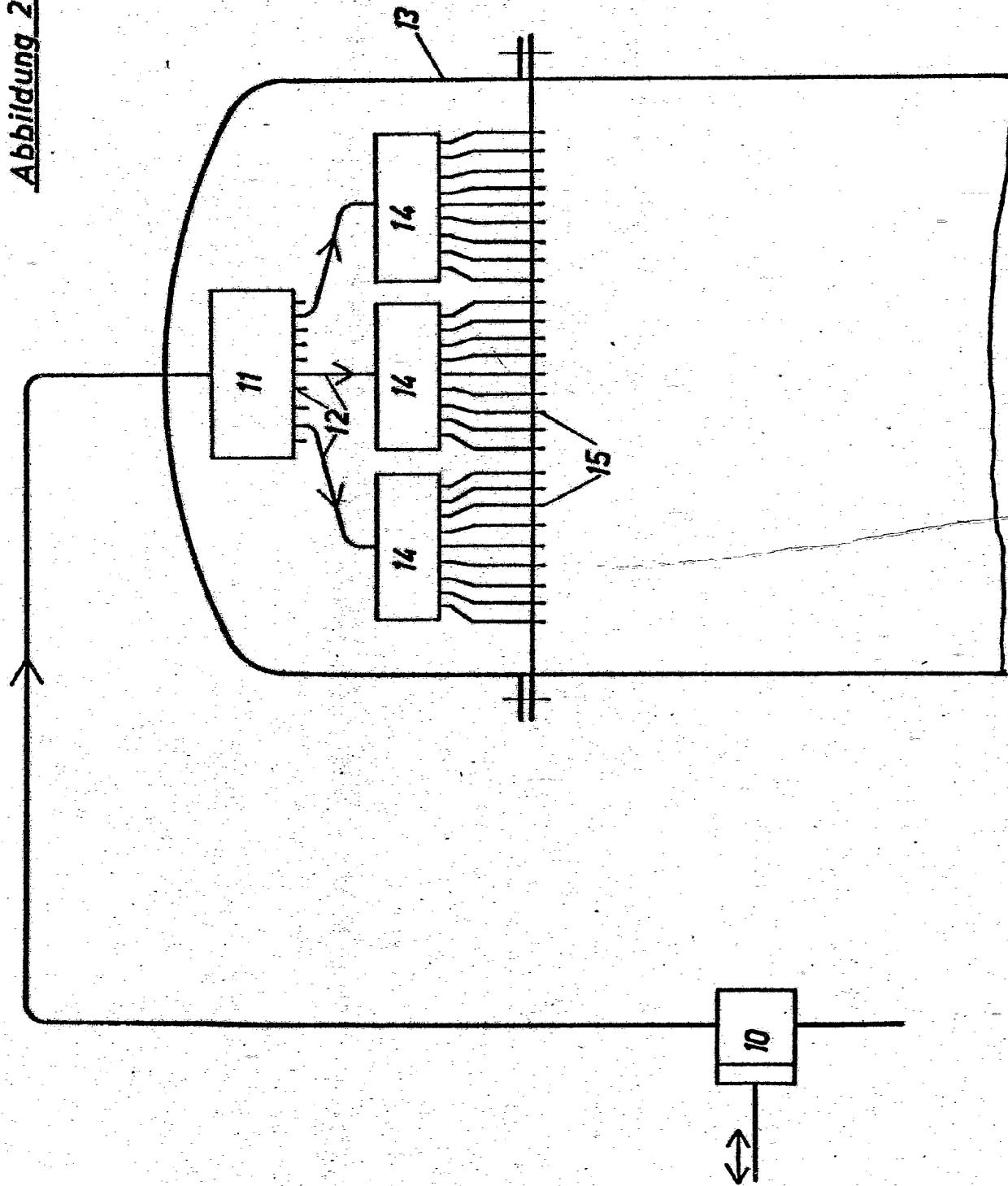


109838/1597

1667247

8

Abbildung 2.



109838/1597